

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/019211

International filing date: 22 December 2004 (22.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2003-427275  
Filing date: 24 December 2003 (24.12.2003)

Date of receipt at the International Bureau: 24 February 2005 (24.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

27.12.2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年 1 2 月 2 4 日  
Date of Application:

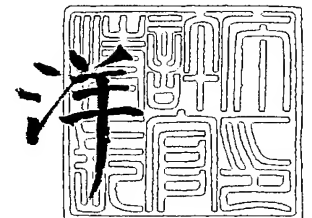
出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 4 2 7 2 7 5  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 3 - 4 2 7 2 7 5 ]

出 願 人            磯 部   信 一 郎  
Applicant(s):      又 賀   駿 太 郎  
                     竹 中   繁 織

2 0 0 5 年   2 月 1 0 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



出証番号   出証特 2 0 0 5 - 3 0 0 9 0 9 6

【書類名】 特許願  
【整理番号】 192340  
【提出日】 平成15年12月24日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H05B 33/14  
C09K 11/06

【発明者】  
【住所又は居所】 福岡県福岡市南区屋形原 1 丁目 1 9 - 2 8 - 1 2  
【氏名】 磯部 信一郎

【特許出願人】  
【住所又は居所】 福岡県福岡市南区屋形原 1 丁目 1 9 - 2 8 - 1 2  
【氏名又は名称】 磯部 信一郎

【特許出願人】  
【識別番号】 501415556  
【住所又は居所】 福岡県大野城市大池 2 丁目 1 7 番 5 号  
【氏名又は名称】 又賀 駿太郎

【特許出願人】  
【識別番号】 399045950  
【住所又は居所】 福岡県古賀市舞の里 4 - 2 3 - 2 1  
【氏名又は名称】 竹中 繁織

【代理人】  
【識別番号】 100086405  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 河宮 治  
【電話番号】 06-6949-1261  
【ファクシミリ番号】 06-6949-0361

【選任した代理人】  
【識別番号】 100091465  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 石井 久夫  
【電話番号】 06-6949-1261  
【ファクシミリ番号】 06-6949-0361

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 163028  
【納付金額】 21, 000円

【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

一般式  $(Y-L)_n X$  (1) で表される有機EL色素。(ここで、 $X$ は価数  $n$  の電荷輸送基、 $Y$ は発色基、 $L$ は電荷輸送基と発色基とを結合する連結基、そして  $n$ は 1 以上の整数である。)

**【請求項 2】**

上記  $X$  が正孔輸送基であり、該正孔輸送基が単環又は多環芳香族基である請求項 1 記載の有機EL色素。

**【請求項 3】**

上記正孔輸送基が、アントラセン基、フェナントレン基、ピレン基、フルオレン基、そしてビフェニレン基から成る群から選択されたいずれか 1 種である請求項 2 記載の有機EL色素。

**【請求項 4】**

上記  $Y$  が電子輸送基であり、該電子輸送基がヘテロ原子を含む単環又は多環芳香族基である請求項 1 記載の有機EL色素。

**【請求項 5】**

上記電子輸送基が、ナフタレンジイミド基又はフェニルジイミド基である請求項 4 記載の有機EL色素。

**【請求項 6】**

上記  $L$  が、一般式  $A_1-R_1-A_2$  (2) で表される請求項 1 から 5 のいずれか一つに記載の有機EL色素。ここで、 $A_1$  は上記電荷輸送基と結合する第 1 結合基、 $A_2$  は上記発色基と結合する第 2 結合基、そして  $R_1$  は第 1 結合基と第 2 結合基を連結するスペーサ基である。

**【請求項 7】**

上記  $R_1$  がアルキレン基又は主鎖にヘテロ原子を含むアルキレン基である請求項 6 記載の有機EL色素。

**【請求項 8】**

上記  $A_1$  がヘテロ原子である請求項 6 又は 7 に記載の有機EL色素。

**【請求項 9】**

上記  $A_2$  が、置換又は未置換のアルキル基、エーテル基、チオエーテル基、置換又は未置換のイミノ基、アミド基、そしてエステル基からなる群から選択されたいずれか 1 種である請求項 6 から 8 のいずれか一つに記載の有機EL色素。

**【請求項 10】**

一対の電極間に挟持された単層の有機層を有し、該有機層が請求項 1 から 9 のいずれか一つに記載の有機EL色素を含有してなる有機EL素子。

【書類名】明細書

【発明の名称】有機EL色素及びそれを用いた有機EL素子

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機EL色素及びそれを発色層に用いた有機EL素子に関する。

【背景技術】

【0002】

現在、エレクトロニクスデバイスの分野では液晶に代わる次世代の発光材料として有機EL色素の開発が盛んに行われている。有機EL色素は、その分子の集合薄膜に電気を流すことで色素分子自身が発光するものであり、理論上小さな電力で発光させることが可能である。そのため、消費電力の大きな液晶画面の代替を目指したエレクトロデバイス用モニターへの応用と実用化のための研究が急ピッチで行われている。

【0003】

有機EL素子是有機EL色素を含む発光層が陽極と陰極との間に保持された構造を有しており、電極から注入された正孔と電子が発光層で再結合し、励起状態から基底状態に緩和する時に発光する。しかしながら、発光層のみから成る単層構造は発光させるのに高電圧を要する。そのため、キャリア輸送と発光の機能を分離した多層構造、例えば、正孔輸送材を含む正孔輸送層と発光層との2層構造（例えば非特許文献1）、又はこれに電子輸送材を含む電子輸送層を追加した3層構造としたパネルを作製することにより、正孔と電子の再結合の効率を高め、10V程度の低電圧で発光させている。

【0004】

しかし、素子構造を多層構造とすると、複数の製膜工程において精密に膜厚制御を行うとともにピンホールフリーの膜を形成する必要がある、素子製造に要する時間とコストが増大するという問題がある。これに対し、素子構造を単層構造とすれば、より低コストで製造できる可能性がある。単層構造の素子としては、例えば、正孔輸送能と電子輸送能の両方を有する有機化合物を用いた有機EL素子が提案されているが（特許文献1）、駆動電圧も20Vと高く、また発光輝度も十分でない。

【特許文献1】特開平2-210790号公報

【非特許文献1】C. W. Tang, S. A. VanSlyke, Appl. Phys. Lett., 51, (12), 21, September, 1987, 913-915.

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明は、上記課題を解決するためになされたものであり、単層構造であっても低電圧で発光可能な有機EL素子を提供可能な有機EL色素及びそれを用いた有機EL素子を提供することを目的とした。

【課題を解決するための手段】

【0006】

上記課題を解決するため、本発明者は、発色基を、正孔又は電子を輸送する電荷輸送基に連結基を介して結合させた化合物が低電圧で発光することを見出して本発明を完成させたものである。すなわち、本発明の有機EL色素は、一般式 $(Y-L)_n X$  (1)で表される化合物であり、Xは価数nの電荷輸送基、Yは発色基、Lは電荷輸送基と発色基とを結合する連結基、そしてnは1以上の整数である。

本発明の有機EL色素が低電圧で発光する理由は明らかではないが、電荷輸送基の存在により発光層の導電性が向上するとともに、電荷輸送基の付近に正孔又は電子が集まる結果、正孔と電子との再結合の効率が高くなることが考えられる。

これにより、多層構造とすることなく、有機EL色素を含む単層構造においても低電圧で発光させることが可能となる。

【0007】

また、上記Xが正孔輸送基である場合、その正孔輸送基には単環又は多環芳香族基を用

いることができる。その正孔輸送基には、アントラセン基、フェナントレン基、ピレン基、フルオレン基、そしてビフェニレン基から成る群から選択されたいずれか1種を用いることができる。さらに、3級アミン基を有する正孔輸送基を用いることもできる。

【0008】

また、上記Yが電子輸送基である場合、その電子輸送基にはヘテロ原子を含む単環又は多環芳香族基を用いることができる。さらに、その電子輸送基には、ナフタレンジイミド基又はフェニルジイミド基を用いることができる。

【0009】

また、上記Lには、一般式 $A_1-R_1-A_2$  (2)なるものを用いることができる。ここで、 $A_1$ は上記電荷輸送基と結合する第1結合基、 $A_2$ は上記発色基と結合する第2結合基、そして $R_1$ は第1結合基と第2結合基を連結するスペーサ基である。

【0010】

また、上記 $R_1$ には、アルキレン基又は主鎖にヘテロ原子を含むアルキレン基を用いることができる。

【0011】

また、上記 $A_1$ には、ヘテロ原子を用いることができる。さらに、上記 $A_2$ には、置換又は未置換のアルキル基、エーテル基、チオエーテル基、置換又は未置換のイミノ基、アミド基、そしてエステル基からなる群から選択されたいずれか1種を用いることができる。

【0012】

また、本発明の有機EL素子は、一对の電極間に挟持された単層の有機層を有し、該有機層が上記一般式(1)で表される有機EL色素を含有してなることを特徴とするものである。

【発明の効果】

【0013】

本発明の有機EL色素を発光層に用いることにより、単層構造であっても、多層構造の素子と同等あるいはそれ以上の低電圧で発光する有機EL素子を提供することが可能となる。これにより、製造工程がより簡略化させ、より低コストの有機EL色素を作製することが可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0014】

以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

本発明の有機EL色素は、一般式 $(Y-L)_n X$  (1)で表される化合物であり、 $X$ は価数 $n$ の電荷輸送基、 $Y$ は発色基、 $L$ は電荷輸送基と発色基とを結合する連結基、そして $n$ は1以上の整数である。

【0015】

電荷輸送基には、電極からの電荷の注入の効率を高めること、そして注入された電荷を効率良く移動させるための高い電荷移動度が必要とされる。

電荷輸送基に正孔輸送基を用いる場合、正孔輸送基には、単環又は多環芳香族基を用いることができる。好ましくは多環芳香族基、さらに好ましくは平面性を有し、より電子供与性の大きい縮合芳香族基を用いることができる。具体例を挙げれば、アントラセン基、フェナントレン基、ピレン基、フルオレン基、そしてビフェニレン基から成る群から選択されたいずれか1種、さらに好ましくはアントラセン基、フェナントレン基又はピレン基を用いることができる。

なお、正孔輸送基の価数 $n$ は、好ましくは1から4、より好ましくは2である。

【0016】

また、正孔輸送基には、3級アミン基 $(-N(Ar_1)(Ar_2))$ を有するものを用いることもできる。3級アミン基が電子供与性を有しているため、正孔輸送性(正孔移動度)が向上するからである。ここで、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ は、それぞれ独立に置換又は無置換の単環又は多環芳香族基である。

3級アミン基を有する正孔輸送基の具体的構成は、例えば、正孔輸送基の価数が少なくとも2価であり、置換部位の1つが3級アミン基であり、残部の置換部位は連結基を介し

て発色基と結合する。又は置換部位の1つが連結基を介して結合した3級アミン基であり、残部の置換部位は連結基を介して発色基と結合する。

#### 【0017】

電荷輸送基に電子輸送基を用いる場合、電子輸送基には、ヘテロ原子を含む単環又は多環芳香族基を用いることができる。好ましくはヘテロ原子を含む多環芳香族基、さらに好ましくはヘテロ原子を有し平面性を有するとともに電子受容性の大きい縮合芳香族基を用いることができる。具体例を挙げれば、ナフタレンジイミド基又はフェニルジイミド基、さらに好ましくはナフタレンジイミド基を用いることができる。なお、ナフタレンジイミド基には、1,8,4,5-ナフタレンジイミドと2,3,6,7-ナフタレンジイミドが含まれる。

なお、電子輸送基の価数 $n$ は、好ましくは1から4、より好ましくは2である。

#### 【0018】

連結基には、一般式 $A_1-R_1-A_2$  (2)で表される化合物を用いることができる。ここで、 $A_1$  は上記電荷輸送基と結合する第1結合基、 $A_2$  は上記発色基と結合する第2結合基、そして $R_1$  は第1結合基と第2結合基を連結するスペーサ基である。

具体例として、スペーサ基にはアルキレン基又は主鎖にヘテロ原子を含むアルキレン基を用いることが好ましい。アルキレン基には、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基を用いることが好ましい。また、主鎖にヘテロ原子を含むアルキレン基としては、エチレンオキサイド基を用い、繰り返し数を1から2とすることが好ましい。

#### 【0019】

また、第1結合基にはヘテロ原子、好ましくは酸素原子、窒素原子を用いることができる。また、第2結合基には置換又は未置換のアルキル基、エーテル基、チオエーテル基、置換又は未置換のイミノ基、アミド基、そしてエステル基からなる群から選択されたいずれか1種を用いることが好ましい。

#### 【0020】

ここで、連結基の役割について説明する。

連結基は、第1結合基と第2結合基とにより、発色基と電荷輸送基との連結を確保する。さらに、スペーサ基の存在は、発色基と電荷輸送基との物理的距離を確保して、発色基と電荷輸送基の分子骨格の選択の自由度を確保する一方、発色基と電荷輸送基とのスタッキングを抑制して発色基の発光波長の変化あるいは発光強度の低下を防止する。さらに、第1結合基にヘテロ原子を用いることは、電荷輸送基と発色基との間の共役や電子共鳴を阻害して発色基の発光波長の変化あるいは発光強度の低下を防止する効果も有する。

また、第1結合基にヘテロ原子を用いると、分子全体をより剛直な構造とすることができるので、スタッキングをさらに抑制することができる。さらに、通電時の発熱による構造変化を抑制して耐熱性を向上させることもできる。

#### 【0021】

発色基には、例えば、テトラフェニルブタジエンやペリレン等の多環芳香族化合物、シクロペンタジエン誘導体、オキサジアゾール誘導体、クマリン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、アクリドン誘導体、キナクドリン誘導体、スチルベン誘導体、オキサゾロピリジン誘導体、イミダゾール誘導体、オキサ(チア)ジアゾロピリジン誘導体、チアジアゾール誘導体、そしてテトラフェニルチオフェン誘導体等を用いることができる。

好ましい発色基と電荷輸送基との組合せは、電荷輸送基が正孔輸送基(電子供与性基)である場合、発色基は電子受容性基を有する色素である。また、電荷輸送基が電子輸送基(電子受容性基)である場合、好ましい発色基は電子供与性基を有する色素である。また、電荷輸送基に連結される発色基の数は、電荷輸送基の電荷輸送性の高低によるが、通常、電荷輸送基の電子供与性又は電子受容性とのバランスをとるため、電荷輸送基1分子当たり2分子以上、より好ましくは2分子である。

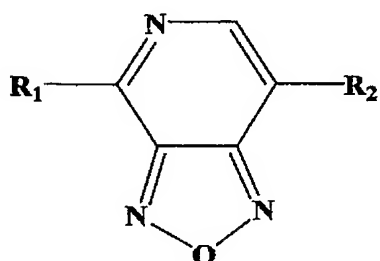
#### 【0022】

本発明に用いる好ましい発色基としては、以下のものを挙げることができる。

1. 以下の一般式で表されるオキサゾロピリジン誘導体

#### 【0023】

【化1】



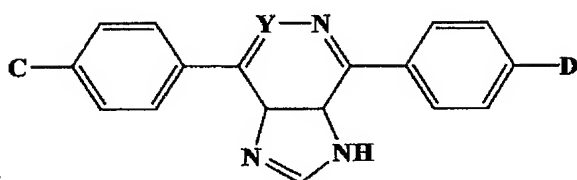
(式中、R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>はそれぞれ独立して置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基を示す。)

【0024】

2. 以下の一般式で示されるイミダゾール誘導体

【0025】

【化2】



2

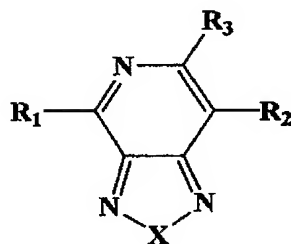
(式中、C、Dは、カルボキシル基を含む、他の置換基を有してもよい芳香族炭化水素基または複素環基またはヘテロ原子を環内に含む芳香族基を示し、CとDは同じでも異なってもよい。Yは、カルボキシル基を有していてもよい炭素原子を示す。)

【0026】

3. 以下の一般式で示されるオキサ（チア）ジアゾロピリジン誘導体

【0027】

【化3】



(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>およびR<sub>4</sub>はそれぞれ独立して置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基を示し、Xは置換基を有していてもよい窒素原子、置換基を有していてもよい硫黄原子、置換基を有していてもよい酸素原子または置換基を有していてもよいセレン原子を示し、R<sub>3</sub>は水素原子、シアノ基、カルボキシル基、置換基を有していてもよいアミド基、置



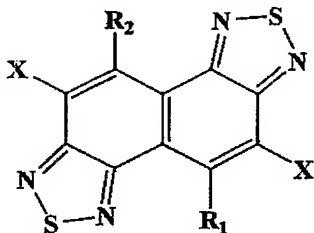
換基を有していてもよいエステル基、置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または置換基を有していてもよい複素環基を示す。)

【0028】

4. 以下の一般式で示されるチアジアゾール誘導体

【0029】

【化4】



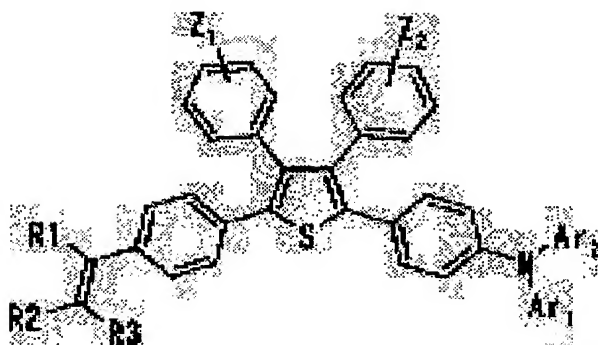
(式中、 $R_1$  および  $R_2$  は、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、カルボキシ基、置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していてもよいアラルキル基、置換基を有していてもよいアルケニル基、置換基を有していてもよいアミノ基、置換基を有していてもよいアミド基、置換基を有していてもよいアルコキシ基、置換基を有していてもよいアルコシカルボニル基、置換基を有していてもよいアルコシスルホニル基、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または置換基を有していてもよい複素環基を示し、 $X$  は水素原子、ハロゲン原子、アルコキシ基またはヒドロキシ基を示す。)

【0030】

5. 以下の一般式で示される2,3,4,5-テトラフェニルチオフエン誘導体1

【0031】

【化5】



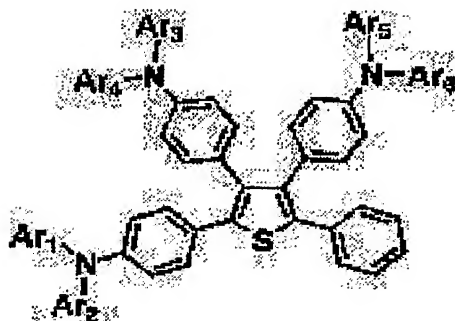
(式中、 $R_1 \sim R_3$  はそれぞれ独立に、水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1$  および  $Ar_2$  は置換または未置換のアリール基を表し、さらに、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成してもよい、を表し、 $Z_1$  および  $Z_2$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアリール基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアミノ基を表す。)

【0032】

6. 以下の一般式で示される2,3,4,5-テトラフェニルチオフエン誘導体2

【0033】

## 【化6】



(式中、Ar<sub>1</sub>～Ar<sub>6</sub>はそれぞれ独立に、置換または未置換のアリール基を表し、さらに、Ar<sub>1</sub>とAr<sub>2</sub>、Ar<sub>3</sub>とAr<sub>4</sub>およびAr<sub>5</sub>とAr<sub>6</sub>は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していても良い。)

## 【0034】

以下、本発明の有機EL素子の構成について説明する。

本発明の有機EL素子は、基体／陽極／発光層／陰極の構成を有し、有機層は発光層のみの単層構造である。

## 【0035】

基体は素子を支持する役割を果たし、透明の基板を用いることができる。透明な基板には、例えば、ガラスや透明プラスチックシート等を用いることができる。

## 【0036】

陽極には、仕事関数の大きい(約4 eV以上)金属、合金又は導電性酸化物からなる電極材料を用いることができる。具体例としては、金、白金、パラジウム、酸化インジウム、酸化スズインジウム(ITO)、酸化スズ等を用いることができる。これらの電極材料を蒸着法やスパッタリング法により基体上に形成することができる。なお、これらの電極材料を単独又は複数使用して多層構造とすることもできる。

また、陽極の厚さは、5～1000nm、好ましくは10～500nmである。

## 【0037】

陰極には、仕事関数の小さな金属を用いることができる。例えば、スズ、マグネシウム、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀又はそれらの合金を用いることができる。これらの電極材料を蒸着法やスパッタリング法により形成することができる。なお、これらの電極材料を単独又は複数使用して多層構造とすることもできる。

また、陰極の厚さは、5～1000nm、好ましくは10～500nmである。

## 【0038】

発光層は、本発明の有機EL色素を真空蒸着法等の物理的製膜法を用いても製膜しても良く、又は有機EL色素とバインダー樹脂を含む溶液を用いて塗布する化学的製膜法も用いることができる。発光層の厚さは、5～300nm、より好ましくは10～150nmである。

## 【実施例】

## 【0039】

以下、本発明の実施例を説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

本実施例で用いた有機EL色素は、以下の方法により合成した。

## 合成例1.

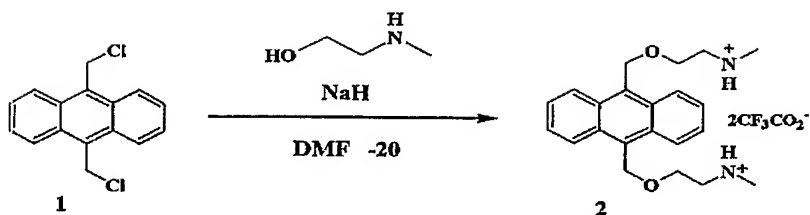
(正孔輸送基にアントラセン基を用いた有機EL色素の合成)

(1) アントラセン四級塩2の合成

アントラセン四級塩2は、以下のスキーム1に従い合成した。

## 【0040】

## 【化7】



Scheme 1

## 【0041】

すなわち、N-メチルエタノールアミン 2.06 g (27.0 mmol)を200 mL三口フラスコで無水DMF 90 mLに溶解した。その後-15℃まで冷却し、60% NaH 1.08 g (27 mmol)を0.5hかけて添加した。添加後-15℃で1時間撹拌した。その後、9,10-ビス(クロロメチル)アントラセン(1) 3.00 g (13.5 mmol)を結晶のままゆっくりと添加した。添加終了から1時間後-10℃まで上昇させ、終夜撹拌を行った。反応終了後、DMFを減圧下留去し、残渣を塩化メチレン200 mLに溶解し不溶分を濾過した。これに水50 mLを加え、撹拌しながらpHが酸性を示すまでTFAを添加した。15分静置した後二層を分離した。この操作を2回行い、水相を濃縮したあと凍結乾燥し、2を 2.43 g、収率33%で得た。

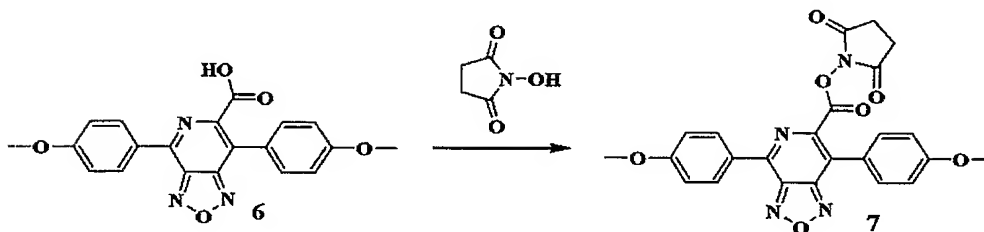
## 【0042】

(2) 発色基7の合成

発色基7は、以下のスキーム 2 に従い合成した。

## 【0043】

## 【化8】



Scheme 2

## 【0044】

50 mL 三口フラスコでオキサジアゾロピリジンカルボン酸 1.0 g (0.0026 mol)とN-ヒドロキシスクシンイミド0.30 g (0.0026 mol)をDMF 20mLに溶解した。これにN, N'-ジシクロヘキシルカルボジイミド 0.54 g (0.0026 mol)を30分かけて滴下した。滴下後、室温で30時間撹拌した。減圧下、DMFを留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(クロロホルム)で単離精製し、オキサジアゾロピリジン活性エステル体 7 を0.76 g、収率62%で得た。

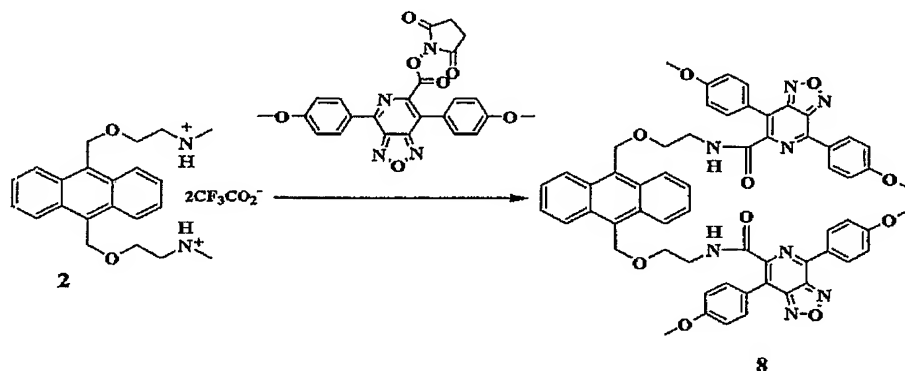
## 【0045】

(3) 有機EL色素8の合成

有機EL色素8は、以下のスキーム 3 に従い合成した。

## 【0046】

## 【化9】



Scheme 3

## 【0047】

すなわち、30 mLの三口フラスコで5 0.35 g (0.26 mmol)、色素 7 0.22 g (0.57 mmol)をDMF 15 mLに溶解した。これにトリエチルアミン79  $\mu\text{L}$  (2.2 eq.)を添加し、室温で3時間攪拌した。その後、DMFを減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒；クロロホルム：メタノール＝10：2）にて単離し、8 を228 mg、収率82%で得た。

## 【0048】

合成例2.

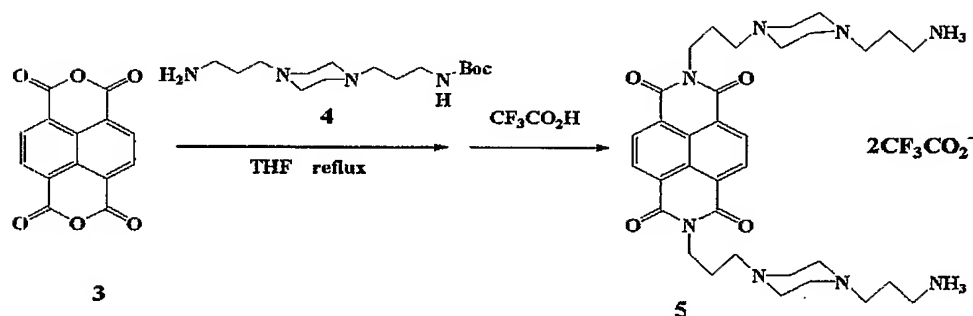
（電子輸送基にナフタレンジイミド基を用いた有機EL色素の合成）

（1）ナフタレンジイミド四級塩5の合成

ナフタレンジイミド四級塩5は、以下のスキーム4に従い合成した。

## 【0049】

## 【化10】



Scheme 4

## 【0050】

すなわち、ナフタレン-1,4,5,8-テトラカルボン酸二無水物 4.6 g (17.3 mmol)、4 12.0 g (39.9 mmol)を300 mL三口フラスコで無水THF 150 mLに溶解した。その後加熱還流し23時間攪拌した。冷却後、30 mLのクロロホルムを加え濾過した。濾液にメタノール200 mLを加えると沈殿物が析出するのでこれを濾過した。濾液を濃縮し、残渣をメタノールに溶解し水で沈殿させた。沈殿物を乾燥し、5を4.82 g、収率34%で得た。

## 【0051】

（2）発色基7の合成

発色基7は、合成1の方法により合成したものをを用いた。

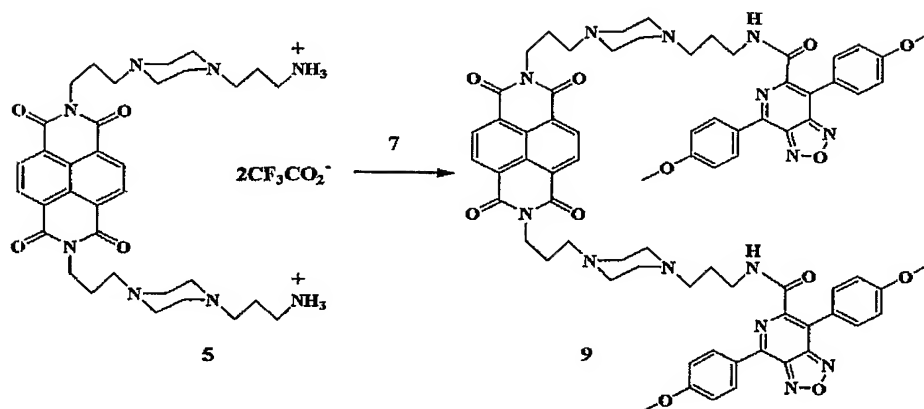
【0052】

(3) 有機EL色素9の合成

有機EL色素9は、以下のスキーム5に従い合成した。

【0053】

【化11】



Scheme 5

【0054】

すなわち、30 mLの三口フラスコで2 0.16 g (0.26 mmol)、色素7 0.22 g (0.57 mmol)をDMF 15 mLに溶解した。これにトリエチルアミン79  $\mu$ L (2.2 eq.)を添加し、室温で3時間攪拌した。その後、DMFを減圧下留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒；クロロホルム：メタノール=10：2）にて単離し、9を180 mg、収率51%で得た。

【0055】

実施例1.

(正孔輸送基を有する有機EL素子の作製)

陽極にITO、そして陰極にアルミニウムを用いた単層構造の素子を以下の手順により作製した。

実験No.1

有機EL色素8 20-50mgを昇華パネルに計量した後、電極に固定した。ITO電極を形成したガラス板 (15mm×15mm) を蒸着装置ULVAC VPC-260にセットし、拡散ポンプにて系内を減圧した ( $5 \times 10^{-5}$  torr)。所定の真空度に到達するまで約3時間を要した。系内が $5 \times 10^{-5}$  torrになったところで250V / 40-65Aの電流によって加熱し、色素層の膜厚が30nmになるまで蒸着を行った（蒸着速度は3Å/s）。所定の蒸着膜に到達したら電源を切断し、その後30分間減圧した。その後、減圧を解除しアルミニウムを電極にセットし、拡散ポンプで減圧を開始した。系内が $5 \times 10^{-5}$  torrになったところで250V / 55-75Aの電流によって加熱し200nmの膜厚になるまで蒸着を行った（蒸着速度は20Å/s）。膜厚が120nmになったら電源を切断し、蒸着装置を冷却した。冷却後ゆっくりと減圧を解除した。蒸着装置を開け、素子を取り出した。予め、乾燥剤を入れたサンプル瓶の口にエポキシ接着剤で素子の蒸着面を接着した。

【0056】

実験No.2及び3

有機EL色素8を用い、実施No.1と同様の方法により、色素層の膜厚45nm、75nmの素子（それぞれ実施No.2と3）を作製した。

【0057】

(発光試験)

電流発生装置には、AND製のAD-8713 Dual DC POWER SUPPLYを用いた。

素子のアルミニウム電極側にマイナス、ITO電極側にプラスを接続した。上限電流を1.5 Aに設定し、可変電圧つまみでゆっくりと電圧をかけ、発光試験を行った。結果を表1に示す。実験No.1~3の検体は各6サンプル、合計18サンプルを作製した。なお、照度は印加電圧が9Vの時の値であり、6サンプルの平均値である。

【0058】

表1.

実験 No.	発光膜の厚さ (nm)	Al層の厚さ (nm)	起動電圧 (V)	電流 (A)	照度 (cd/cm <sup>2</sup> )
1	30	200	3.6-4.3	0.04-0.12	1000
2	45	200	6.5-6.8	0.07-0.14	1300
3	75	200	8.3-8.7	0.10-0.16	1400

【0059】

発光試験で、発光層の膜厚が30nmの素子の発光を写真撮影した(図1)。図1中、(a)、(b)、(c)、(d)は、それぞれ印加電圧が3.6V、4.5V、7.7V、9.0Vの結果を示す。作製したパネルは3.6Vの低電圧から発光を始めた。多層構造の有機EL素子でエネルギー効率が良いとされる素子は約3-5Vで発光すると言われている。これに対し、本発明の有機EL素子は、単層構造として初めて、多層構造と同等以上の低電圧で発光することができた。そして印加電圧を上げるにつれ照度も向上した。

【0060】

実施例2.

(電子輸送基を有する有機EL色素の合成)

有機EL色素9 50mgを用い、実施例1と同様の方法により発光層の膜厚が50nmの単層構造の素子を作製し、さらに発光試験を行った。結果を表2に示す。起動電圧は実施例1の場合と比較すると高いが、10V以下で黄緑色に発光した。なお、照度は印加電圧が(9V)の時の値であり、6サンプルの平均値である。

【0061】

表2.

発光膜の厚さ (nm)	Al層の厚さ (nm)	起動電圧 (V)	電流 (A)	照度 (cd/cm <sup>2</sup> )
50	200	9.0-9.7	0.05-0.10	1000

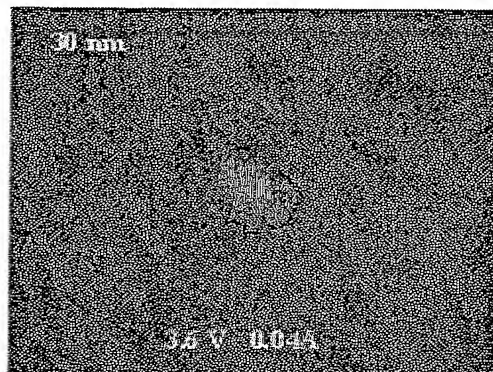
【図面の簡単な説明】

【0062】

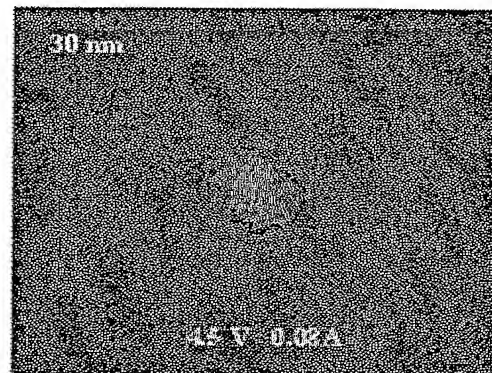
【図1】発光試験の結果を示す写真であり、(a)、(b)、(c)、(d)は、それぞれ印加電圧が3.6V、4.5V、7.7V、9.0Vの例を示す。

【書類名】 図面  
【図 1】

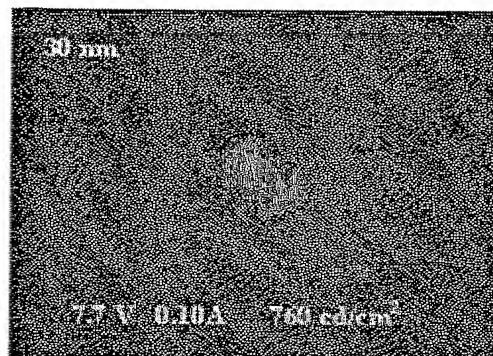
a.



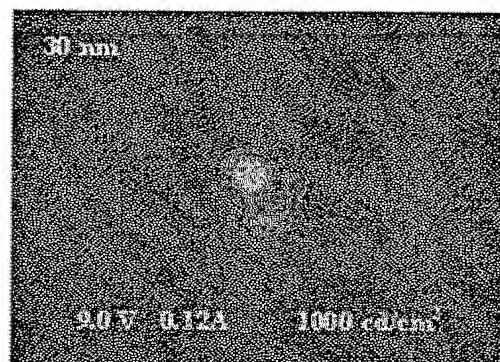
b.



c.



d.



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 単層構造であっても低電圧で発光可能な有機EL素子を提供可能な有機EL色素及びそれを用いた有機EL素子を提供すること。

【解決手段】 一般式  $(Y-L)_n X$  (1) で表される有機EL色素を用いる。ここで、 $X$ は価数 $n$ の電荷輸送基、 $Y$ は発色基、 $L$ は電荷輸送基と発色基とを結合する連結基、そして $n$ は1以上の整数である。

【選択図】 なし



## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 4 2 7 2 7 5
受付番号	5 0 3 0 2 1 2 0 2 9 9
書類名	特許願
担当官	第四担当上席 0 0 9 3
作成日	平成 1 6 年 1 月 5 日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【特許出願人】

【識別番号】	503474098
【住所又は居所】	福岡県福岡市南区屋形原 1 丁目 1 9 - 2 8 - 1 2
【氏名又は名称】	磯部 信一郎

## 【特許出願人】

【識別番号】	501415556
【住所又は居所】	福岡県大野城市大池 2 丁目 1 7 番 5 号
【氏名又は名称】	又賀 駿太郎

## 【特許出願人】

【識別番号】	596057011
【住所又は居所】	福岡県古賀市舞の里 4 - 2 3 - 2 1
【氏名又は名称】	竹中 繁織

## 【代理人】

申請人	
【識別番号】	100086405
【住所又は居所】	大阪府大阪市中央区城見 1 丁目 3 番 7 号 I M P ビル 青山特許事務所
【氏名又は名称】	河宮 治

## 【選任した代理人】

100091465	
【識別番号】	100091465
【住所又は居所】	大阪府大阪市中央区城見 1 丁目 3 番 7 号 I M P ビル 青山特許事務所
【氏名又は名称】	石井 久夫

特願 2 0 0 3 - 4 2 7 2 7 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 5 0 1 4 1 5 5 5 6 ]

1. 変更年月日 2 0 0 1 年 1 0 月 2 5 日

[変更理由] 新規登録

住 所 福岡県大野城市大池 2 丁目 1 7 番 5 号

氏 名 又賀 駿太郎

特願 2 0 0 3 - 4 2 7 2 7 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 3 9 9 0 4 5 9 5 0 ]

1. 変更年月日 2 0 0 1 年 5 月 1 6 日  
[変更理由] 識別番号の二重登録による抹消  
[統合先識別番号] 5 9 6 0 5 7 0 1 1  
住 所 福岡県古賀市舞の里 4 - 2 3 - 2 1  
氏 名 竹中 繁織

特願 2 0 0 3 - 4 2 7 2 7 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 5 9 6 0 5 7 0 1 1 ]

1. 変更年月日 2 0 0 1 年 5 月 1 6 日  
[変更理由] 識別番号の二重登録による統合  
[統合元識別番号] 3 9 9 0 4 5 9 5 0  
住 所 福岡県古賀市舞の里 4 - 2 3 - 2 1  
氏 名 竹中 繁織

特願 2 0 0 3 - 4 2 7 2 7 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 5 0 3 4 7 4 0 9 8 ]

1. 変更年月日

2 0 0 3 年 1 2 月 2 4 日

[変更理由]

新規登録

住 所

福岡県福岡市南区屋形原 1 丁目 1 9 - 2 8 - 1 2

氏 名

礒部 信一郎